

09/202.216

5

PCT/JP 97/01939

日本国特許庁 14.07.97

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application:

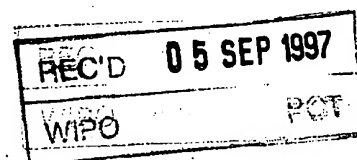
1996年 6月10日

出願番号
Application Number:

平成 8年特許願第147418号

出願人
Applicant(s):

日鉄鉱業株式会社
中塚 勝人

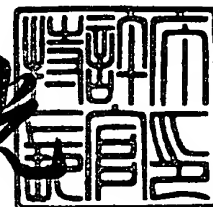


PRIORITY DOCUMENT

1997年 8月22日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

荒井寿光



出証番号 出証特平09-3064043

【書類名】 明細書

【発明の名称】 化粧品原料粉体

【特許請求の範囲】

【請求項1】 比重0.3～2.8の粉体核粒子の表面に複数の屈折率の異なる被膜層を有することを特徴とする化粧品原料粉体。

【請求項2】 粉体核粒子が有機物であることを特徴とする請求項1記載の化粧品原料粉体。

【請求項3】 被膜層の少なくとも1層が無機金属化合物層であることを特徴とする請求項1記載の化粧品原料粉体。

【請求項4】 被膜層の少なくとも1層が金属層または合金層であることを特徴とする請求項1記載の化粧品原料粉体。

【請求項5】 被膜層の少なくとも1層が有機物層であることを特徴とする請求項1記載の化粧品原料粉体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、化粧品原料粉体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

本発明者らは先に、金属粒子又は金属化合物粒子だけが備える性質のほかに別の性質を合わせ持ち、複合した機能を有する粉体を提供するために、金属又は金属化合物粉体核粒子の表面に、均一な0.01～20 μ mの厚みの、前記粉体核粒子を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を有する粉体を発明した（特開平6-228604号公報）。また、本発明者らは前記の粉体をさらに改良し、金属酸化物膜単独ではなく、金属酸化物膜と金属膜とを交互に複数層有するようにした粉体も発明した（特開平7-90310号公報）。

【0003】

これらの粉体を製造するには、粉体核粒子の上に均一な厚さの金属酸化物膜を複数層設けることが必要であって、そのためには金属塩水溶液から金属酸化物又

はその前駆体である金属化合物を沈殿させることが難しいので、本発明者らは、金属アルコキシド溶液中に前記の粉体を分散し、該金属アルコキシドを加水分解することにより、前記粉体上に金属酸化物膜を生成させる方法を開発し、この方法によって薄くてかつ均一な厚さの金属酸化物膜を形成することができるようになり、特に多層の金属酸化物膜を形成することが可能になった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、金属や金属化合物を核とする粉体は比重が大きいため液中で沈降しやすく、沈降分離して均一化しにくく、化粧品原料、特に乳液状化粧品原料には使用しにくいという問題がある。また、例えば樹脂粉体表面に酸化チタン等の粒子を付着させた場合、使用中に表面の被覆殻から粉体粒子が剥離し、このため色が変わることがあるという問題がある。本発明は、これらの問題を解消した軽い粉体のカラー化粧品原料を提供することを目的とするものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、鋭意研究を進めた結果、粉体核粒子表面に屈折率の異なる多層の薄膜を形成することにより多層膜の反射光干渉波形を調整し、染料や顔料を用いずとも青、緑、黄色などの安定な色調の着色粉体が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0006】

すなわち、本発明の化粧品原料粉体は、比重0.3～2.8の粉体核粒子の表面に複数の屈折率の異なる被膜層を有することを特徴とするものである。

【0007】

【発明の実施の形態】

本発明において、化粧品原料粉体の核を構成する比重0.3～2.8の粉体核粒子は特に限定されるものではなく、有機物でも無機物でもよい。但し、入手、調製の容易性から有機物が好ましく、より詳細には樹脂粒子が好ましい。樹脂粒子の具体例としては、セルロースパウダー、酢酸セルロースパウダー、ポリアミド、エポキシ樹脂、ポリエステル、メラミン樹脂、ポリウレタン、酢酸ビニル樹

脂、ケイ素樹脂、アクリル酸エステル、メタアクリル酸エステル、スチレン、エチレン、プロピレン及びこれらの誘導体の重合または共重合により得られる球状または破碎の粒子などが挙げられる。特に好ましい樹脂粒子はアクリル酸またはメタアクリル酸エステルの重合により得られる球状のアクリル樹脂粒子である。

無機物としてはシラスバルーン（中空ケイ酸粒子）などの無機中空粒子、微小炭素中空球（クレカスフェア）、電融アルミナバブル、アエロジル、ホワイトカーボン、シリカ微小中空球、炭酸カルシウム微小中空球、炭酸カルシウム、パーライト、タルク、ベントナイト、カオリン等を用いることができる。

【0008】

本発明の化粧品原料粉体において、比重0.3～2.8の粉体核粒子の表面に形成される複数の被膜層は、それらの屈折率が互いに異なるものであることが必要であり、それらの被膜層を構成する材料は無機金属化合物、金属または合金、および有機物のうちから任意に選択することが望ましい。

【0009】

被膜層を構成する無機金属化合物としては、その代表的なものとして金属酸化物が挙げられ、具体例として例えば鉄、ニッケル、クロム、チタン、アルミニウム、ケイ素、カルシウム、マグネシウム、バリウムなどの酸化物、あるいはこれらの複合酸化物が挙げられる。さらに、金属酸化物以外の金属化合物としては鉄窒化物などの金属窒化物、金属炭化物などが挙げられる。

【0010】

被膜層を構成する金属単体としては金属銀、金属コバルト、金属ニッケル、金属鉄などが挙げられ、金属合金としては鉄・ニッケル合金、鉄・コバルト合金、鉄・ニッケル合金窒化物、鉄・ニッケル・コバルト合金窒化物などが挙げられる。

【0011】

被膜層を構成する有機物としては、核を構成する上記の有機物と同一でも異なってもよく、特に限定されるものではないが、好ましくは樹脂である。樹脂の具体例としては、セルロース、酢酸セルロース、ポリアミド、エポキシ樹脂、ポリエステル、メラミン樹脂、ポリウレタン、酢酸ビニル樹脂、ケイ素樹脂、アクリ

ル酸エステル、メタアクリル酸エステル、スチレン、エチレン、プロピレン及びこれらの誘導体の重合体または共重合体などが挙げられる。

【0012】

このように、被膜層を構成する材料として種々の材料を使用することができるが、本発明の粉体が化粧品原料である以上、当然のことながら最外層の被膜層を構成する材料は生体に対して不活性であるか、少なくとも悪影響を及ぼさないものでなければならない。そのような材料の代表例として二酸化チタンを挙げることができる。

また、二酸化チタンは、UV波を特異的に吸収するという性質を持つことから、有効であるといえる。また、金属膜と酸化チタン膜を使用し、膜厚を適当に制御することにより、赤外域全域において高い反射率を有する粉体とすることができ、UVならびにIRカット化粧料とすることもできる。

【0013】

本発明の化粧品原料粉体の粒径は、特に限定されず、目的に応じて適宜調整することができるが、通常は0.01 μ m～数mmの範囲である。

【0014】

また、前記複数の被膜層を構成する各単位被膜層は、特定の同一波長の干渉反射ピークまたは干渉透過ボトムを有するように各単位被膜層の膜厚を設定したものであることが望ましい。さらに好ましくは、各単位被膜層の膜厚の設定は、下記式(1)：

$$N \times d = m \times \lambda / 4 \quad (1)$$

〔但し、Nは複素屈折率、dは基本膜厚、mは整数（自然数）、 λ は前記干渉反射ピークまたは干渉透過ボトムの波長を表し、Nは下記式(2)：

$$N = n + i \kappa \quad (2)$$

（nは各単位被膜層の屈折率、iは複素数、 κ は減衰係数を表す）〕

を満たす基本膜厚とし、屈折率の減衰係数 κ による位相ずれ、膜界面での位相ずれ、屈折率の分散および粒子形状に依存するピークシフトからなる関数より、各単位被膜層が前記特定の同一波長の干渉反射ピークまたは干渉透過ボトムを有するように、該各単位被膜層の実膜厚を補正したものである。

【0015】

その膜の形成方法としては、その形成する物質に応じて次のような方法を挙げることができるが、その外の方法を使用することができる。

(1) 有機物膜（樹脂膜）を形成する場合

a. 液相中での重合法

核となる粒子を分散させて乳化重合させることにより、その粒子の上に樹脂膜を形成させる方法などが使用できる。

b. 気相中での製膜法（CVD）（PVD）

【0016】

(2) 無機金属化合物膜を形成する場合

a. 液相中での固相析出法

核となる粒子を金属アルコキシド溶液中に分散し、金属アルコキシドを加水分解することにより、その粒子の上に金属酸化物膜を形成する方法が好ましく、緻密な金属酸化物膜を形成することができる。また、金属塩水溶液の反応により粒子の上に金属酸化物膜等を形成することができる。

b. 気相中での製膜法（CVD）（PVD）

(3) 金属膜あるいは合金膜を形成する場合

a. 液相中での金属塩の還元法

金属塩水溶液中で金属塩を還元して金属を析出させて金属膜を形成する、いわゆる化学メッキ法が使用される。

b. 気相中での製膜法（CVD）（PVD）

金属の真空蒸着などにより、粒子の表面に金属膜を形成することができる。

【0017】

次に一例として、高屈折率の金属酸化物と低屈折率の金属酸化物の交互多層膜を形成する方法について具体的に説明する。まず、チタンあるいはジルコニウムなどのアルコキシドを溶解したアルコール溶液に粉体核粒子を分散し、攪拌させながら水とアルコール及び触媒の混合溶液を滴下し、前記アルコキシドを加水分解することにより、粉体核粒子表面に高屈折率膜として酸化チタン膜あるいは酸化ジルコニウム膜を形成する。その後、この粉体を固液分離し、乾燥後、熱処理

を施す。乾燥手段としては、真空加熱乾燥、真空乾燥、自然乾燥のいずれでもよい。また、雰囲気調整しながら不活性雰囲気中で噴霧乾燥機などの装置を用いることも可能である。熱処理は、酸化しない皮膜組成物は空気中で、酸化しやすい皮膜組成物は不活性雰囲気中で、150～1100℃（粉体核粒子が無機粉体の場合）または150～500℃（粉体核粒子が無機粉体以外の場合）で1分～3時間熱処理する。続いて、ケイ素アルコキシド、アルミニウムアルコキシドなどの、酸化物になったときに低屈折率となる金属アルコキシドを溶解したアルコール溶液に、前記の高屈折率膜を形成した粉体を分散し、攪拌させながら水とアルコール及び触媒の混合溶液を滴下し、前記アルコキシドを加水分解することにより、粉体表面に低屈折率膜として酸化ケイ素あるいは酸化アルミニウムの膜を形成する。その後、粉体を固液分離し、真空乾燥後、前記と同様に熱処理を施す。この操作により、粉体の表面に2層の、高屈折率の金属酸化物膜と低屈折率の金属酸化物膜を有する粉体が得られる。さらに、この金属酸化物膜を形成する操作を繰り返すことにより、多層の金属酸化物膜をその表面上に有する粉体が得られる。その際、前記したように、高屈折率の金属酸化物膜と低屈折率の金属酸化物膜が交互に設けられている粉体とすることにより、高い反射率を有する粉体が得られ、白色度の高い粉体となる。

【0018】

粉体核粒子または金属酸化物膜の表面に金属膜を設ける手段としては、上記無電解メッキ法による他、接触電気メッキ法によって設けることもでき、またスパッタリング法によって設けることもできる。しかしながら、接触電気メッキ法では粉体が電極に接触しないときにはメッキされず、スパッタリング法においては、粉体に金属蒸気が均一に当たらず、いずれの方法も各粉体にごとに被覆される膜厚が異なる。これに対して、無電解メッキによる皮膜形成法では緻密で均一な膜を形成でき、かつ膜厚を調節しやすいので好ましい。また金属膜は、金属酸化物膜と同様に皮膜形成後に加熱処理することが好ましい。

【0019】

以下、図面を参照しながら本発明をさらに詳しく説明する。図1は、本発明の化粧品原料粉体の概念的構造を示す断面図であって、有機物からなる粉体1を核

とし、その表面に2層の、屈折率の異なる被膜層2、3がそれぞれ設けられている。

【0020】

また、粉体核粒子の表面に形成する屈折率の異なる交互被覆膜の各層の厚さを調整することにより特別の機能を与えることができる。例えば、粉体核粒子の表面に、屈折率の異なる交互被覆膜を、次の式(1)を満たすように、被膜を形成する物質の屈折率 n と可視光の波長の4分の1の整数 m 倍に相当する厚さ d を有する交互膜を適当な厚さと枚数設けると、特定の波長 λ の光(フレネルの干渉反射を利用したもの)が反射または吸収される。

$$n d = m \lambda / 4 \quad (1)$$

この作用を利用して、粉体核粒子の表面に目標とする可視光の波長に対し式(1)を満たすような膜の厚みと屈折率を有する酸化物膜を製膜し、さらにその上に屈折率の異なる酸化物膜を被覆することを1度あるいはそれ以上交互に繰り返すことにより可視光域に特有の反射あるいは吸収波長幅を有する膜が形成される。このとき製膜する物質の順序は次のように決める。まず核となる有機物の屈折率が高いときには第1層目が屈折率の低い膜、逆の関係の場合には第1層目が屈折率の高い膜とすることが好ましい。

【0021】

膜厚は、膜屈折率と膜厚の積である光学膜厚の変化を分光光度計などで反射波形として測定、制御するが、反射波形が最終的に必要な波形になるように各層の膜厚を設計する。例えば、図2に示すように、多層膜を構成する各単位被膜の反射波形のピーク位置がずれた場合に白色の粉体となり、一方、図3に示すように各単位被膜の反射波形のピーク位置を精密に合わせると、染料や顔料を用いずとも青、緑、黄色などの単色の着色粉体とすることができる。

【0022】

ただし、実際の粉体の場合、粉体の粒径、形状、膜物質および核粒子物質の相互の界面での位相ずれ及び屈折率の波長依存性によるピークシフトなどを考慮して設計する必要がある。例えば、核粒子の形状が平行平板状である場合には、粒子平面に形成される平行膜によるフレネル干渉は上記式(1)の n を次の式(2

) の N に置き換えた条件で設計する。特に、粉体の形状が平行平板状である場合でも金属膜が含まれる場合には、式(2)の金属の屈折率 N に減衰係数 κ が含まれる。なお、透明酸化物(誘電体)の場合には κ は非常に小さく無視できる。

$$N = n + i\kappa \quad (i \text{ は複素数を表す}) \quad (2)$$

この減衰係数 κ が大きいと、膜物質および核粒子物質の相互の界面での位相ずれが大きくなり、さらに多層膜のすべての層に位相ずれによる干渉最適膜厚に影響を及ぼす。

【0023】

これにより幾何学的な膜厚だけを合わせてもピーク位置がずれるため、特に単色に着色する際に色が淡くなる。これを防ぐためには、すべての膜に対する位相ずれの影響を加味し、コンピュータシミュレーションであらかじめ膜厚の組合せが最適になるように設計する。

【0024】

さらに、金属表面にある酸化物層のための位相ずれや、屈折率の波長依存性によるピークシフトがある。これらを補正するためには、分光光度計などで、反射ピークや吸収ボトムが最終目的膜数で目標波長になるよう最適の条件を見出すことが必要である。

【0025】

球状粉体などの曲面に形成された膜の干渉は平板と同様に起こり、基本的にはフレネルの干渉原理に従う。したがって、着色方法も図2および図3のように白色および単色に設計することができる。ただし曲面の場合には、粉体に入射し反射された光が複雑に干渉を起こす。これらの干渉波形は膜数が少ない場合には平板とほぼ同じである。しかし、総数が増えると多層膜内部での干渉がより複雑になる。多層膜の場合もフレネル干渉に基づいて、反射分光曲線をコンピュータシミュレーションであらかじめ膜厚の組合せが最適になるよう設計することができる。特に粉体核粒子表面への被膜形成の場合、粉体核粒子表面とすべての膜に対する位相ずれの影響を加味し、コンピュータシミュレーションであらかじめ膜厚の組合せが最適になるよう設計する。さらに、粉体核粒子表面にある酸化物層のためのピークシフトや屈折率の波長依存性によるピークシフトも加味する。実際

のサンプル製造では設計した分光曲線を参考にし、実際の膜においてこれらを補正するために、分光光度計などで反射ピークや吸収ボトムが最終目的膜数で目標波長になるよう膜厚を変えながら最適の条件を見出さねばならない。不定形状の粉末に着色する場合も多層膜による干渉が起こり、球状粉体の干渉多層膜の条件を参考にし基本的な膜設計を行う。上記の多層膜を構成する各単位被膜のピーク位置は各層の膜厚により調整することができ、膜厚は溶液組成および反応時間および原料の添加回数による調整することができ所望の色に着色することができる。以上のように、反射ピークや吸収ボトムが最終目的膜数で目標波長になるよう膜形成溶液などの製膜条件を変えながら最適の条件を見出すことにより、白色および単色の粉体を得ることができる。また、多層膜を構成する物質の組合せおよび各単位被膜の膜厚を制御することにより多層膜干渉による発色を調整することができる。これにより、染料や顔料を用いなくても粉体を所望の色に鮮やかに着色することができる。

【0026】

【実施例】

以下、本発明を実施例によりさらに具体的に説明する。ただし、本発明はこの実施例のみに限定されるものではない。

【0027】

【実施例1】

(1層目チタニアコーティング)

アクリル粉体（平均粒子径 $1.5\mu\text{m}$ ） 10g に対しエタノール 250ml を加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を 55°C に保持した。これにチタンイソプロポキシド 3.5g を加え攪拌した。さらにエタノール 30ml と水 3.5g の混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で 180°C 、8時間乾燥した。乾燥後、チタニアコート粉体 A_1 を得た。得られたチタニアコート粉体 A_1 は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体の分光反射曲線のピーク波長は 455nm であり、ピーク波長での反射率は 32% で、淡い青色であった。

【0028】

(2層目ポリスチレンコーティング)

蒸留水600gにスチレンモノマー100gを入れ、70℃まで加熱攪拌しながらラウリル硫酸ナトリウムを入れ乳化した。これにチタニアコート粉体A₁ 25gを混合し、高速攪拌し十分混合した。これに過硫酸アンモニウム水溶液10%を添加し、重合反応を開始させ、4時間攪拌し反応させた。反応終了後、蒸留水2リットルで希釈し、傾斜洗浄で上液を捨て沈殿物を集めた。沈殿物を濾紙上で乾燥し、ポリスチレン-チタニアコート粉体A₂を得た。得られたポリスチレン-チタニアコート粉体A₂は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。

【0029】

(3層目チタニアコーティング)

ポリスチレン-チタニアコート粉体A₂ 10gに対しエタノール250mlを加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を55℃に保持した。これにチタンイソプロポキシド3.4gを加え攪拌した。さらにエタノール30mlと水3.4gの混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で180℃、8時間乾燥した。乾燥後、チタニア-ポリスチレンコート粉体Aを得た。得られたチタニア-ポリスチレンコート粉体Aは分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体Aの分光反射曲線のピーク波長は448nmであり、ピーク波長での反射率は45%で、青色であった。

【0030】

上記第1～3層の屈折率および膜厚を表1に示す。

【0031】

【表1】

表1

被膜層	屈折率	膜厚 (nm)
第1層チタニア膜	2.3	50
第2層ポリスチレン膜	1.5	75
第3層チタニア膜	2.3	49

【0032】

〔実施例2〕

(1層目チタニアコーティング)

アクリル粉体(平均粒子径 $1.5\mu\text{m}$) 10g に対しエタノール 250ml を加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を 55°C に保持した。これにチタンイソプロポキシド 4.5g を加え攪拌した。さらにエタノール 30ml と水 4.5g の混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で 180°C 、8時間乾燥した。乾燥後、チタニアコート粉体 B_1 を得た。得られたチタニアコート粉体 B_1 は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体 B_1 の分光反射曲線のピーク波長は 545nm であり、ピーク波長での反射率は31%で、緑色であった。

【0033】

(2層目ポリスチレンコーティング)

蒸留水 600g にスチレンモノマー 127g を入れ、 70°C まで加熱攪拌しながらラウリル硫酸ナトリウムを入れ乳化した。これにチタニアコート粉体 B_1 25g を混合し、高速攪拌し十分混合した。これに過硫酸アンモニウム水溶液10%を添加し、重合反応を開始させ、4時間攪拌し反応させた。反応終了後、蒸留水2リットルで希釈し、傾斜洗浄で上液を捨て沈殿物を集めた。沈殿物を濾紙上で乾燥し、ポリスチレン-チタニアコート粉体 B_2 を得た。得られたポリスチレン-チタニアコート粉体 B_2 は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。

【0034】

(3層目チタニアコーティング)

ポリスチレン-チタニアコート粉体 B_2 10g に対しエタノール 250ml を加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を 55°C に保持した。これにチタンイソプロポキシド 4.5g を加え攪拌した。さらにエタノール 30ml と水 4.5g の混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で 180°C 、8時間乾燥した。乾燥後、チタニア-ポリスチレンコート粉体 B_3 を得た。得られたチタニア-ポリスチレンコート粉体 B_3 は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体

B₃ の分光反射曲線のピーク波長は544 nmであり、ピーク波長での反射率は43%で、緑色であった。

【0035】

(4層目ポリスチレンコーティング)

蒸留水600 gにスチレンモノマー127 gを入れ、70℃まで加熱攪拌しながらラウリル硫酸ナトリウムを入れ乳化した。これにチタニア-ポリスチレンコート粉体B₃ 25 gを混合し、高速攪拌し十分混合した。これに過硫酸アンモニウム水溶液10%を添加し、重合反応を開始させ、4時間攪拌し反応させた。反応終了後、蒸留水2リットルで希釈し、傾斜洗浄で上液を捨て沈殿物を集めた。沈殿物を濾紙上で乾燥し、ポリスチレン-チタニアコート粉体B₄ を得た。得られたポリスチレン-チタニアコート粉体B₄ は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。

【0036】

(5層目チタニアコーティング)

ポリスチレン-チタニアコート粉体B₄ 10 gに対しエタノール250 mlを加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を55℃に保持した。これに、チタンイソプロポキシド4.5 gを加え攪拌した。さらにエタノール30 mlと水4.5 gの混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で180℃、8時間乾燥した。乾燥後、チタニア-ポリスチレンコート粉体Bを得た。得られたチタニア-ポリスチレンコート粉体Bは分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体Bの分光反射曲線のピーク波長は552 nmであり、ピーク波長での反射率は58%で、緑色であった。さらに、チタニア膜により300 nm以下の紫外光は吸収され、反射率はこの領域で1%以下であった。

【0037】

上記第1～5層の屈折率および膜厚を表2に示す。

【0038】

【表2】

表2

被膜層	屈折率	膜厚 (nm)
第1層チタニア膜	2.3	59
第2層ポリスチレン膜	1.5	92
第3層チタニア膜	2.3	59
第4層ポリスチレン膜	1.5	93
第5層チタニア膜	2.3	60

【0039】

【実施例3】

(1層目チタニアコーティング)

アクリル粉体（平均粒子径 $1.5\mu\text{m}$ ） 10g に対しエタノール 250ml を加え分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を 55°C に保持した。これにチタンイソプロポキシド 5.5g を加え攪拌した。さらにエタノール 30ml と水 5.5g の混合溶液を 6.0 分かけて滴下した後、 2 時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で 180°C 、 8 時間乾燥した。乾燥後、チタニアコート粉体 C_1 を得た。得られたチタニアコート粉体 C_1 は分散性が良く、それぞれ単粒子であった。

【0040】

(2層目金属銀コーティング)

チタニアコート粉体 C_1 20g に対し、あらかじめ用意した銀溶液中に攪拌しながら分散させた。攪拌分散させながら還元液 600ml を投入し 30 分間攪拌した。その結果、分散性の良い金属銀-チタニアコート粉体 C_2 が得られた。なお、前記の銀液および還元液は次のように調製した。銀液は硝酸銀 8.75g を蒸留水 300ml に溶解した。ここで酸化銀の沈殿が出来たので、沈殿が錯イオン化するまでアンモニア水（ 29% ）を加えた。続いて、あらかじめ用意した水酸化ナトリウムを蒸留水 300ml に溶解した溶液を添加した。再び酸化銀の沈殿が出来たので、沈殿が錯イオン化するまでアンモニア水（ 29% ）を加え銀液

とした。還元液は水1リットルに対しブドウ糖45gを溶解し、さらに酒石酸4gを加えて溶解し、5分間煮沸した。冷却後、エタノール100mlを加え還元液とした。

【0041】

(3層目チタニアコーティング)

金属銀-チタニアコート粉体C₂ 10gをエタノール250ml中に分散し、容器をオイルバスで加熱して液の温度を55℃に保持した。これにチタンイソプロポキシド4.5gを加え攪拌した。さらにエタノール30mlと水5.5gの混合溶液を60分かけて滴下した後、2時間反応させ、十分な量のエタノールで希釈洗浄した後、真空乾燥機で180℃、8時間乾燥した。乾燥後、チタニア-金属銀コート粉体Cを得た。得られたチタニア-金属銀コート粉体Cは分散性が良く、それぞれ単粒子であった。また、この粉体の分光反射曲線のボトム波長は585nmであり、両側に向かって反射率が上昇した。最大反射率は45%で、赤紫であった。さらに、赤外域では銀膜による反射で780~910nmで反射率は上昇し続け、最大反射率は60%であった。しかし紫外域では銀膜およびチタニア膜により300nm以下の紫外光が吸収され、反射率はこの領域で5%以下であった。

【0042】

上記第1~3層の屈折率および膜厚を表3に示す。

【0043】

【表3】

表3

被膜層	屈折率	膜厚 (nm)
第1層チタニア膜	2.3	64
第2層金属銀膜	0.1 + 3.5 i	20
第3層チタニア膜	2.3	64

【0044】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の軽いカラー化粧品原料粉体によれば、染料や顔料を用いずとも、マスカラやまゆずみなどの原料として青、緑、黄色などの単色の着色粉体を設計することができる。この化粧品原料粉体は染料や顔料を用いないため、染料や顔料の欠落、変質により色あせがなく、長期にわたり鮮明な色を保つことができる。また、着色だけではなく、例えばUVカット（日焼け止め）クリームやファンデーションなどの原料として紫外線や赤外線など有害な波長の電磁波を吸収して皮膚に到達しないような多層膜構造の粉体を設計することもできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の化粧品原料粉体の概念的構造を示す断面図である。

【図2】

白色に着色した粉体の多層膜を構成する各単位被膜の反射強度の分光波形を示すグラフである。

【図3】

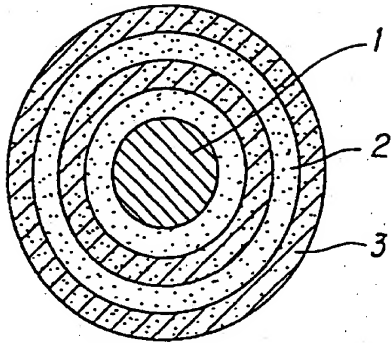
単色に着色した粉体の多層膜を構成する各単位被膜の反射強度の分光波形を示すグラフである。

【符号の説明】

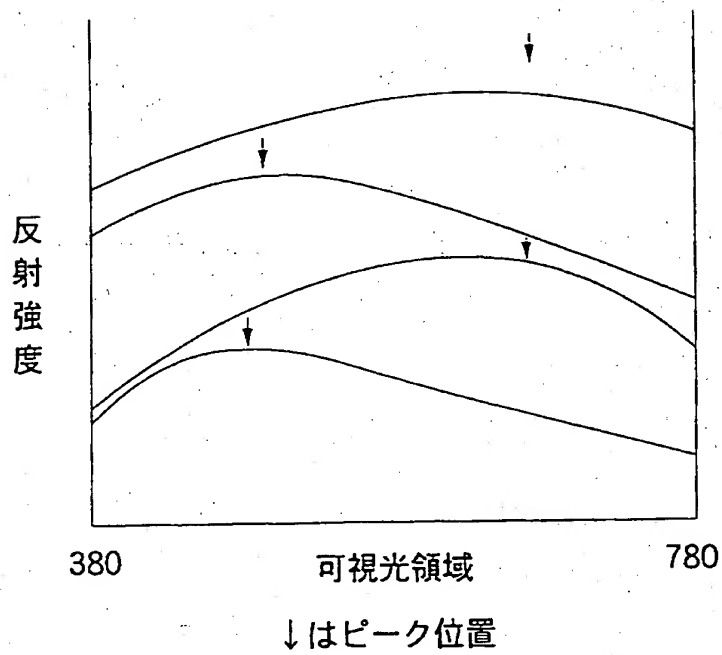
- 1 粉体核粒子
- 2 被膜層
- 3 被膜層

【書類名】 図面

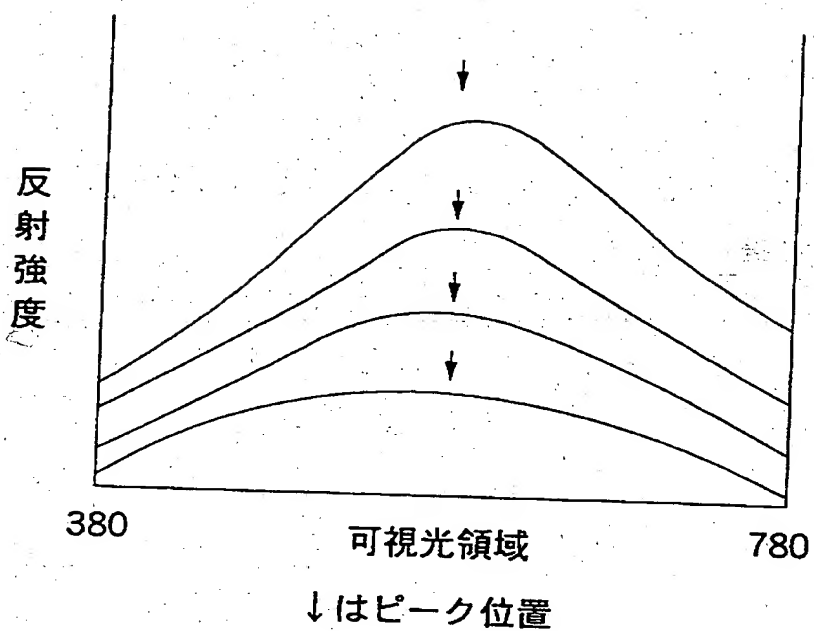
【図1】



【図2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 染料や顔料を用いずとも、マスカラやまゆずみなどの化粧品原料として青、緑、黄色などの単色の着色粉体を設計することができ、かつ皮膚に有害な紫外線や赤外線を吸収することができる多層膜構造の粉体を設計することができる軽いカラー化粧品原料粉体を提供する。

【解決手段】 アクリル樹脂粒子や無機中空粒子などの比重0.3～2.8の粉体核粒子1の表面に複数の屈折率の異なる薄い被膜層（二酸化チタン膜、チタニア膜、ポリスチレン膜、金属銀膜など）2, 3を有することを特徴とする。

【選択図】 図1

【書類名】

職権訂正データ

【訂正書類】

特許願

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】

000227250

【住所又は居所】

東京都千代田区丸の内2丁目3番2号

【氏名又は名称】

日鉄鉱業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】

594166535

【住所又は居所】

宮城県仙台市太白区茂庭台4丁目3番5の1403

【氏名又は名称】

中塚 勝人

【代理人】

申請人

【識別番号】

100073874

【住所又は居所】

東京都港区赤坂1丁目12番32号 アーク森ビル
28階 栄光特許事務所

【氏名又は名称】

萩野 平

【選任した代理人】

【識別番号】

100081075

【住所又は居所】

東京都港区赤坂1丁目12番32号 アーク森ビル
28階 栄光特許事務所

【氏名又は名称】

佐々木 清隆

【選任した代理人】

【識別番号】

100066429

【住所又は居所】

東京都港区赤坂1丁目12番32号 アーク森ビル
28階 栄光特許事務所

【氏名又は名称】

深沢 敏男

【選任した代理人】

【識別番号】

100093573

【住所又は居所】

東京都港区赤坂1丁目12番32号 アーク森ビル
28階 栄光特許事務所

【氏名又は名称】

添田 全一

特平 8-147418

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000227250]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区丸の内2丁目3番2号

氏 名 日鉄鉱業株式会社

特平 8-147418

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [594166535]

1. 変更年月日 1994年10月 7日

[変更理由] 新規登録

住 所 宮城県仙台市太白区茂庭台4丁目3番5の1403

氏 名 中塚 勝人

【書類名】 特許願

【整理番号】 P-24572

【提出日】 平成 8年 6月10日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明の名称】 化粧品原料粉体

【請求項の数】 5

【発明者】

【住所又は居所】 東京都西多摩郡日の出町平井字欠下2番1号 日鉄鉱業株式会社内

【氏名】 新子 貴史

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区茂庭台四丁目3番5の1403号

【氏名】 中塚 勝人

【特許出願人】

【識別番号】 000227250

【氏名又は名称】 日鉄鉱業株式会社

【代表者】 ▲吉▼田 純

【特許出願人】

【識別番号】 594166535

【氏名又は名称】 中塚 勝人

【代理人】

【識別番号】 100073874

【弁理士】

【氏名又は名称】 萩野 平

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100081075

【弁理士】

【氏名又は名称】 佐々木 清隆

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100066429

【弁理士】

【氏名又は名称】 深沢 敏男

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100093573

【弁理士】

【氏名又は名称】 添田 全一

【電話番号】 03-5561-3990

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008763

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9300907

【プルーフの要否】 要